

ETUDE
sur l'emploi, comme condensateur,
d'éléments électrolytiques
à électrodes d'aluminium

THÈSE DE DOCTORAT
PRÉSENTÉE A LA FACULTE DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE FRIBOURG

PAR

JEAN DE MODZELEWSKI

FRIBOURG
IMPRIMERIE FRAGNIÈRE FRÈRES

1908

ETUDE

sur l'emploi, comme condensateur,
d'éléments électrolytiques
à électrodes d'aluminium

THÈSE DE DOCTORAT
PRÉSENTÉE A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE FRIBOURG

PAR

Jean de Modzelewski



FRIBOURG
IMPRIMERIE FRAGNIÈRE FRÈRES
—
1908

Droguem Ojcu te prae
posicionem Autor'



Digitized by the Internet Archive
in 2026

ETUDE SUR L'EMPLOI

comme condensateur

d'éléments électrolytiques à électrodes d'aluminium

Ayant eu à m'occuper de la fabrication et de l'application des condensateurs à haute tension, mon attention s'est portée tout naturellement sur les condensateurs à basse tension.

De nombreuses raisons me portaient à admettre la possibilité d'employer des éléments d'électrolyse à électrodes d'aluminium, en guise de condensateurs à basse tension, et je fus amené à étudier de plus près les questions qui se rapportent à cette nouvelle application. Les résultats des recherches faites sur ce sujet au point de vue physique forment la teneur du présent travail.

Les premières observations relatives à l'augmentation considérable de la résistance qu'oppose, au passage du courant continu, après un temps très court, une anode d'aluminium en électrolyte oxydant, ont été publiées par Ruff¹⁾.

Wöhler²⁾ et Retz³⁾ se sont ensuite occupés du même phénomène. Ils ont établi que le courant électrique détermine sur les anodes en aluminium, dans certains électrolytes, la formation d'une pellicule mince d'oxyde d'aluminium, qui possède toutes les propriétés d'un diélectrique, notamment une haute résistance.

¹⁾ Liebig's Auss. 1. II 1857. p. 269.

²⁾ Liebig's Auss. 1. III 1858. p. 218.

³⁾ Nied. Auss. 1866, tome 127, p. 56.

Le développement de l'électrotechnique avait déjà entre-temps, ouvert aux accumulateurs électriques, le champ de l'application pratique, et les courants alternatifs commençaient à être utilisés industriellement. D'autre part, on pouvait aussi, par les procédés électrochimiques, produire l'aluminium à l'état de pureté et à bon marché.

Ces circonstances incitèrent, presque en même temps, Grætz et Pollak¹⁾, à entreprendre de nouvelles expériences, en vue de réaliser un redresseur de courants permettant l'emploi des batteries d'accumulateurs dans les installations à courants alternatifs.

Leurs recherches, indépendantes bien que simultanées, furent connues par un schéma de 'connexions spécial pour la transformation du courant alternatif total en courant continu, dans une centrale électrique. Les éléments du redresseur électrolytique sont composés d'une électrode en aluminium et d'une électrode en métal indifférent, de sorte que le courant ne peut passer que dans un sens, celui pour lequel l'électrode d'aluminium joue le rôle de cathode. La conductibilité de l'élément est donc en quelque sorte unipolaire, et ce fait trouve son explication dans la rapidité de formation et de décomposition de la pellicule mince d'oxyde d'aluminium sous l'action du courant alternatif, le phénomène se reproduisant à chaque alternance.

La question offrait de plus en plus d'intérêt à la suite de ces publications, et de nombreux physiciens poursuivirent ces premiers essais. Plusieurs brevets furent pris sur des perfectionnements apportés aux redresseurs électrolytiques, principalement en ce qui concerne le choix de l'électrolyte.

¹⁾ E. T. Z. 1897.

Dans la publication la plus récente qui, à ma connaissance, ait paru à ce sujet, Max Jakob ¹⁾, à la suite de considérations théoriques, conclut à l'impossibilité d'introduire les redresseurs électrolytiques dans l'industrie électrique, le faible rendement (env. 50 %) des éléments à l'électrode active en aluminium mettant ces appareils en état de trop grande infériorité vis à vis des convertisseurs électromécaniques.

Quant à l'emploi d'éléments à cathode d'aluminium comme condensateurs, la question n'a été qu'effleurée par quelques auteurs, p. ex. Max Jakob, qui déclare lui-même n'avoir fait que quelques expériences qualitatives s'y rapportant, et il n'a pas paru, à notre connaissance, d'étude approfondie du sujet, dans cette voie.

Dans le présent travail, j'ai voulu étudier exclusivement les conditions d'emploi, comme condensateurs, les éléments électrolytiques à électrodes d'aluminium. Le champ d'expérimentation que j'ai choisi est donc celui qui a été le moins exploré par les physiciens cités plus haut. Je n'entrerais pas en discussion sur les questions qui n'ont trait qu'à l'emploi des éléments électrolytiques comme redresseurs de courants, et me contenterai de mentionner, pour autant qu'elles rentrent dans le cadre spécial de ce travail, les expériences faites en dehors de ces questions.

Le point de vue où je me suis placé et le but de cette étude étant bien définis, la suite des recherches qu'elle a entraînées s'impose tout naturellement, comme suit :

1. Formation du diélectrique (pellicule d'oxyde d'aluminium); détermination du degré de formation par la mesure de la résistance ohmique; recherche sur la rigidité diélectrique de la pellicule d'oxyde d'aluminium.

¹⁾ Sammlung electrotech. Vortäge. Tome IX, liv. 1-3.

2. Effet utile ($\cos \varphi$) des condensateurs électrolytiques à électrodes d'aluminium; fonctionnement en régime prolongé; relation entre la grandeur et la constance de la capacité et le degré de formation.

3. Expériences relatives à la construction de condensateurs électrolytiques à électrodes d'aluminium.

I. Formation du diélectrique ;

détermination du degré de formation par la mesure de la résistance ohmique ;
recherches sur la rigidité diélectrique de la pellicule d'oxyde d'aluminium.

A l'exemple d'un grand nombre d'expérimentateurs, qui se sont occupés de l'emploi de l'élément électrolytique comme redresseur de courants, j'ai employé comme électrolyte, dans mes expériences préliminaires, une solution à 5 % de bicarbonate de soude.

Par une formation prolongée sous courant continu, et en élevant lentement la tension jusqu'à 130 volts. nous avons pu amener la résistance ohmique à la valeur de 1 000 000 ohms environ, par cm^2 de surface d'électrode. Les variations irrégulières de la résistance, qui tombait souvent à des valeurs relativement faibles, la destruction des électrodes et la formation d'un précipité — qui tombait sous forme de cones au fond de la cuve d'électrolyse, et devenait considérable après quelques semaines de fonctionnement — constituaient autant de preuves du peu de valeur de la solution de bicarbonate de soude comme électrolyte, pour l'application que nous avions en vue dans nos expériences. Ces vues sont confirmées par les déclarations d'un brevet de l'A. E. G.¹⁾. J'entrepris alors des essais

¹⁾ D. R. P. N° 130.725 Kl. 21 g., de l'A. E. G. Il est proposé notamment comme électrolyte « un métal terreux en combinai-

avec une solution de bicarbonate d'ammonium, qui donna de bons résultats même après un fonctionnement prolongé, de sorte que je fis toutes les expériences suivantes avec une solution à 6 % de ce sel comme électrolyte.

J'aborde maintenant la description du dispositif que j'ai adopté définitivement pour la formation des électrodes et la mesure du degré de formation sous courant continu.

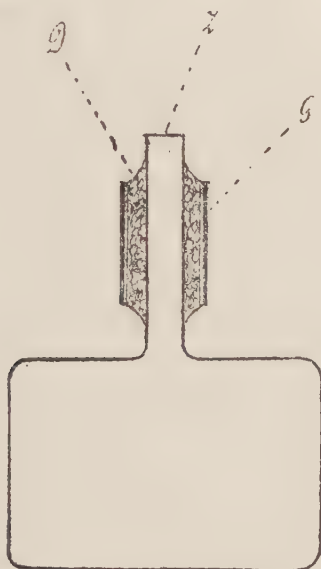


FIG. 1.

La languette Z., utilisée pour le raccord à la source de courant, est entourée d'un tube de verre G. fermé hermétiquement par un tampon de paraffine D. Par suite de cette disposition, il était possible de

son avec un acide organique, avec excès d'acide libre pour éviter la formation d'un précipité, p. ex. le citrate de Magnesium ou le citrate d'Aluminium, qui sont particulièrement recommandables. »

maintenir toujours les mêmes conditions, quant à la surface des électrodes et à leur formation, en plongeant la plaque dans le bain jusqu'à mi-hauteur du tube de verre G. Les plaques préparées de cette façon étaient ensuite lavées dans une solution de potasse caustique et rincées à l'eau pure. Afin d'éviter toute trace de métaux étrangers, elles étaient encore traitées par une solution diluée d'acide nitrique et lavées à l'eau.

Les deux électrodes d'aluminium ainsi purifiées étaient suspendues à quelque distance l'une de l'autre, dans un bac de verre de $20 \times 30 \times 25$ cm., et court-circuitées extérieurement par une armature métallique commune. La formation se faisait sous courant continu, les électrodes réunies servaient d'anode dans le circuit électrolytique de formation. La cathode de ce dernier était constituée par une plaque de nickel de $20 \times 5 \times 0,2$ cm. L'élément électrolytique ainsi constitué, représenté en croquis fig. 2, était rempli d'une solution à 6 % environ de bicarbonate d'ammonium.

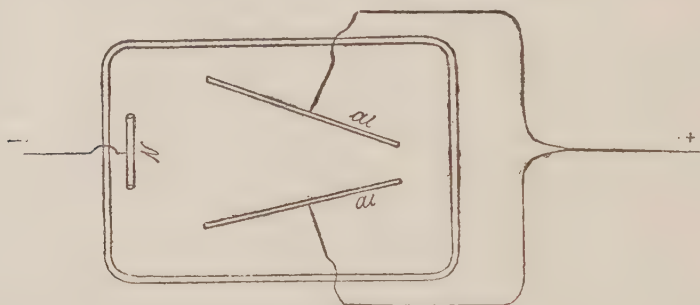


FIG. 2.

Le courant de formation était emprunté à une batterie d'accumulateurs de 134 volts de tension maximum; les tensions plus élevées étant obtenues par l'addition en série d'un certain nombre d'éléments transportables (fig. 3 a). Afin de pouvoir augmenter le voltage dans de plus larges limites, je fis en outre

usage d'un moteur shunt à courant continu de 1 HP, entraîné en génératrice par un moteur triphasé (fig. 3a).

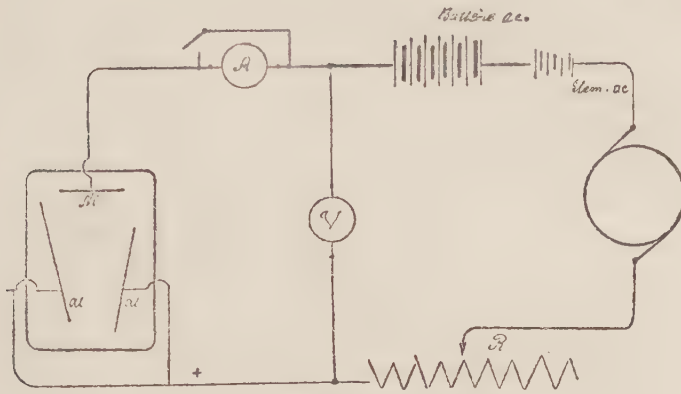


FIG. 3a.

N'ayant à ma disposition, pour alimenter ce moteur que du courant alternatif monophasé, un condensateur à haute tension et une bobine de self étaient nécessaires pour le transformer en courant triphasé (fig. 3 b). Le réglage de la tension du courant continu de formation se faisait au moyen d'un rhéostat de lampes.

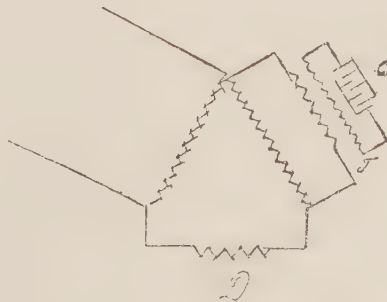


FIG. 3b.

- C. — Batterie de condensateurs.
- F. — Transformateur.
- D. — Bobine de self.

Le courant était mesuré, pendant la formation des plaques, par un galvanomètre universel de Siemens et Halske, qui indiquait, sous shunt, 1 milliampère par division, et dont la graduation suffisait jusque à 150 milliampères. Cet instrument était mis en connexion en série avec l'électrode en aluminium de l'élément d'essai.

Afin de pouvoir mettre l'instrument hors-circuit, soit pendant la nuit, soit pour changer la sensibilité de la mesure, sans devoir interrompre le courant de formation, un interrupteur mis en parallèle avec le milliampèremètre permettait de mettre celui-ci en court-circuit.

La tension était mesurée au moyen d'un voltmètre thermique de Hartmann et Braun, à trois graduations : 65 volts, 130 volts et 260 volts. La mesure de tensions supérieures à ce maximum se faisait par un milliampèremètre avec résistance-série, que l'on substituait au voltmètre thermique, en parallèle avec l'élément d'essai.

Vers la fin de la formation de l'électrode, l'intensité du courant, devenue très faible, était mesurée par un milliampèromètre de Carpentier, suffisant pour un courant maximum de 10 milliampères, et indiquant $\frac{1}{10}$ milliampère par division. Tous les appareils de mesure avaient été calibrés au préalable. Les chiffres que nous donnons dans les tables sont les valeurs corrigées des observations.

Dans ce qui suit, on pourra voir les différentes phases de la formation des électrodes d'aluminium.

L'élément d'essai, avec les deux plaques d'aluminium à l'anode et la plaque de nickel à la cathode, est intercalé dans le circuit à courant continu fourni par la batterie. Celle-ci crée une tension de 134 volts environs, et le rhéostat de lampes, en série avec l'élément d'essai, permet de réduire l'intensité du courant à 0,5 ampères environ. La tension varie de quel-

ques volts et atteint 130 volts après un laps de temps de 15 minutes. Le courant baisse, en ce moment, jusqu'à 0,1 ampère. Cette réduction de l'intensité du courant s'accroît ; après un nouveau laps de temps de 30 minutes, nous n'avons plus que 0,04 ampère et 126 volts, et, après un jour de formation, à 128 volts, le courant tombe à 0,013 ampère.

Comme il serait inutile de vouloir améliorer la formation des plaques dans ces conditions, même en prolongeant considérablement l'opération, nous portons maintenant la tension de la batterie à 144 volts, par l'addition de quelques éléments transportables. Après une nouvelle période de 6 heures, à cette tension, la résistance de la pellicule d'oxyde d'aluminium s'est améliorée au point que, sous une tension de 126 volts, l'intensité du courant n'atteint plus que 0,0057 ampère.

Après une formation de 14 heures sous 144 volts, suivie d'une formation complémentaire de 6 heures, le courant est de 0,0038 ampère sous 126 volts.

Au moyen de la dynamo auxiliaire, nous avons élevé graduellement, d'une manière analogue, la tension de formation à 180 volts. Après une formation complémentaire sous 127 volts, le courant résultant n'était plus que de 0,002 ampère.

La gradation lente de la tension de formation est une condition nécessaire de la régularité de l'opération ; on observe en effet, si l'on procède par variations trop brusques dans le réglage, une augmentation notable de l'intensité du courant, en même temps que des à coups dans la courbe de celle-ci, et la résistance des plaques devient mauvaise, même aux basses tensions. Afin de me rendre compte de l'influence de l'élévation trop brusque de la tension de formation sur la résistance finale, j'ai élevé le voltage jusqu'à 220 volts. A ce moment déjà, les surfaces de l'anode paraissaient couvertes d'un grand nombre de petits traits lumineux mobiles. Ce phénomène lumineux a

déjà été observé par Mitkewitsch¹⁾, et Max Jakob a trouvé, à la suite d'expériences spéciales, faites dans les mêmes conditions, une grande analogie entre ce phénomène et ceux qui se manifestent dans l'interrupteur de Wehmelt.

Franz Fischer²⁾ a démontré qu'il est possible par un refroidissement énergique de l'anode, d'élever notablement la valeur de la tension déterminant l'apparition des traits lumineux. Il explique ce phénomène par la rupture, en certains points, de la pellicule d'oxyde d'aluminium sous l'action de la vapeur d'eau.

Après avoir terminé la formation des plaques sous la tension de 180 volts, je passai aux essais avec courant alternatif, décrits plus loin, pour différents degrés de formation. J'ai poussé ensuite la tension de formation à 274 volts, voltage maximum dont je disposais en courant continu.

Après formation sous 274 volts, j'ai obtenu :

à 274 volts, un courant de 0,33 ampère,

à 220 « , « « « 0,018 « .

On voit aisément, d'après ces mesures, combien la pellicule d'oxyde d'aluminium peut gagner en résistance, si l'on opère avec précaution, dans la période de formation; les traits lumineux qui paraissaient déjà à 220 volts, en opérant trop brusquement, n'existent plus maintenant, même à 274 volts, et il est probable qu'en continuant de la même façon, j'aurais pu pousser plus loin encore la tension de formation, sans provoquer la rupture de la pellicule d'oxyde.

Les conclusions à tirer des expériences ci-dessus peuvent se résumer comme il suit :

- a) Lors de la formation de la pellicule d'oxyde d'aluminium sur les plaques, on atteint vite une

¹⁾ Elektrischestwo 1901, p. 17 et 33.

²⁾ Zeitschrift für Elektrochemie, X^e année, 1904, n^o 46.

limite de formation si l'on opère avec une tension déterminée. A partir de ce moment, la prolongation de l'opération sans changement du voltage n'améliore plus le degré de formation des plaques.

- b) Les hauts degrés de formation peuvent s'obtenir seulement par une augmentation lente et graduelle du voltage, et par une formation complémentaire à une tension déterminée, plus basse que la tension de formation.

Les deux tables ci-après montrent la dépendance entre l'intensité du courant, la résistance spécifique et la tension. Les nombres de la première table se rapportent à des électrodes formées à 213 volts. Pour les nombres de la seconde table, la tension de formation est de 274 volts.

Des mesures de la tension et de l'intensité du courant continu, on a déduit la résistance totale R des plaques, ensuite, la résistance spécifique R.S. par 1 cm² de surface d'électrode.

Table I

Plaques formées sous 213 volts

Tension du courant continu en volts V.	Intensité en $\frac{1}{1000}$ amp. I. 10 ⁻³	Résistance totale en ohms R.	Résistance par 1 cm ² en 10 ⁸ ohms R. S.
146,8	5,03	29100	0,47
137,2	3,27	41900	0,67
130,8	2,48	52700	0,84
119,1	1,57	75800	1,21
106,9	1,00	106000	1,71
102,4	0,87	116000	1,87
98,8	0,80	123000	1,97
87,1	0,48	181000	2,90
74,0	0,27	274000	4,39
64,1	0,18	356000	5,70
55,0	0,11	500000	8,00
43,0	0,06	716000	11,47

Table II

Plaques formées sous 274 volts

Tension du courant continu en volts	Intensité en $\frac{1}{1000}$ amp.	Résistance totale en ohms	Résistance par 1 cm ² en 10 ⁸ ohms
V.	J. 10 ⁻³	R.	R. S.
147,0	2,22	66200	1,06
142,0	1,95	72700	1,16
131,1	1,46	89700	1,44
119,7	1,07	111000	1,79
107,4	0,74	145000	2,32
99,2	0,60	165000	2,65
91,4	0,45	203000	3,25
83,5	0,33	253000	4,05
71,2	0,20	356000	5,70
63,0	0,13	471000	7,74
49,5	0,06	825000	13,20
39,2	0,03	1306000	20,90

Le graphique de la fig. 9 représente l'intensité du courant en fonction de la tension. Les volts sont portés en abscisses et les milliampères en ordonnées

Les deux courbes, correspondant aux deux états de formation des plaques, montrent clairement que les intensités les plus faibles correspondent partout au degré de formation le plus avancé pour les tensions adoptées dans les deux essais.

La fig. 10 est la représentation graphique de la variation de la résistance ohmique par 1 cm² de surface anodique, avec la tension, dans les deux états de formation des plaques. On voit aisément que la résistance ohmique a augmenté dans le second état de formation; de plus, elle n'est pas constante mais diminue toujours quand la tension appliquée augmente.

2. Essai en courant alternatif ; Détermination de l'effet utile et du fonctionnement en régime prolongé ; Grandeur et constance de la capacité des condensateurs électrolytiques à électrode d'aluminium.

Ayant déterminé, par les essais précédents, les conditions à observer lors de la formation des plaques, pour obtenir sur les électrodes d'aluminium une pellicule d'oxyde qui puisse remplir le même rôle qu'un diélectrique proprement dit, nous pouvons passer à l'étude du fonctionnement d'un condensateur ainsi formé en régime prolongé, au point de vue de son rendement et de sa capacité.

Pour les expériences suivantes, j'enlève de l'élément la plaque de nickel ayant servi à la formation des électrodes d'aluminium, je sépare celles-ci et les dispose en regard l'une de l'autre, comme les armatures d'un condensateur, et je les intercale dans le circuit à courant alternatif comme l'indique le schéma de connexions suivant (fig. 4).

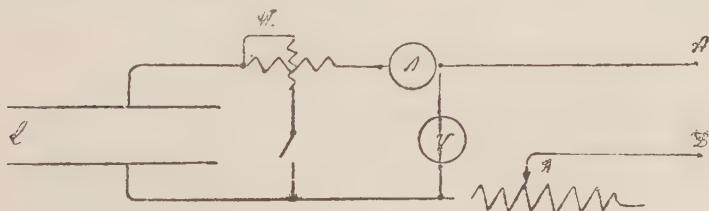


FIG. 4.

Le courant pris aux bornes A. et B., à la tension de 150 volts, est du courant alternatif à 50 alternances par seconde. Il est réglé à la tension voulue au moyen d'un rhéostat de lampes R. La tension est mesurée par le voltmètre thermique de Hartmann et Braun employé déjà précédemment, et l'intensité du courant, par un ampèremètre thermique de Hartmann et Braun ca-

libré pour un courant maximum de 0,5 ampère, gradué à raison de 1 division par $\frac{1}{100}$ ampère.

Un wattmètre de précision de Siemens et Halske, avec résistance-série dans le courant de la bobine à fil fin, sert à la mesure de la puissance. Après chaque lecture au wattmètre, à une tension déterminée, le circuit à fil fin du wattmètre est interrompu, et, ayant réglé la tension exactement sur la même valeur, on fait la lecture à l'ampèremètre. Le courant du circuit à fil fin du wattmètre n'influence donc pas la lecture des intensités.

Le condensateur formé comme nous l'avons expliqué fut mis en circuit le 22 février 1906, et fonctionna sans interruption jusqu'au 2 mars.

Le tableau suivant renferme les lectures faites et le facteur de puissance calculé à l'aide de celles-ci.

22/II	60	volts	0,36	amp.	1	watt	d'où $\cos \phi =$	0,046
23/II	60,6	»	0,37	»	1,07	»	»	0,047
24/II	60	»	0,385	»	1,2	»	»	0,052
26/II	60	»	0,410	»	1,7	»	»	0,069
27/II	60	»	0,431	»	1,8	»	»	0,070
28/II	60	»	0,437	»	2	»	»	0,076
1/III	60,6	»	0,458	»	2,3	»	»	0,083

Il résulte de cet essai que les pertes en régime prolongé avaient été doublées après une semaine de fonctionnement. On pouvait s'attendre à ce que cette augmentation des pertes continuât dans la même proportion, et qu'il fallût renoncer à l'emploi économique des éléments électrolytiques expérimentés, comme condensateurs : il semblait inutile de s'appliquer à obtenir un degré élevé de formation de la pellicule d'oxyde, au moyen du courant continu, puisque cette formation ne se maintenait pas, dès qu'on prolongeait la durée du fonctionnement en courant alternatif.

En discutant ces résultats avec M. J. Moscicki, il nous vint à l'idée de faire une nouvelle série d'essais, afin de voir s'il n'était pas possible de combiner la

Le condensateur qui avait servi à nos premières expériences, et dont le rendement avait fortement diminué par suite du fonctionnement en courant-alternatif, fut remis en circuit avec le nouveau dispositif de connexions, afin de voir si son rendement continuerait à diminuer.

L'effet du circuit de régénération se fit sentir aussitôt ; déjà après une heure de fonctionnement, non seulement le rendement diminué par la série d'essais précédente, n'avait plus subi de réduction, mais il avait repris sa valeur initiale, qui était très favorable.

Ce résultat était des plus encourageants. Afin de rendre le fonctionnement du condensateur indépendant de l'emploi d'une source spéciale de courant continu pour la régénération de la pellicule d'oxyde, circonstance qui eût été un obstacle sérieux à l'emploi pratique de cet appareil, le schéma des connexions fut de nouveau modifié. Le courant continu, au lieu d'être emprunté à la batterie d'accumulateurs, fut obtenu par redressement du courant alternatif au moyen d'un groupe, très peu important d'ailleurs, de redresseurs, d'après le schéma de Grätz. Ajoutons à ces appareils un petit transformateur. Le reste du dispositif précédent n'est pas changé, et la batterie a été remplacée par le petit groupe transformateur-redresseur (fig. 6).

Des bornes A. et B. du condensateur e., le courant alternatif est amené aux bornes a. et c. du transformateur par deux dérivations. Le schéma de Grätz et Pollak se trouve entre les bornes secondaires de ce transformateur. Le courant est filtré par les redresseurs G_3 , G_4 , G_5 , G_6 , et le point f constitue le pôle positif, le point g le pôle négatif du circuit de régénération. Le rapport de transformation du transformateur est tel, que les maxima de la tension du courant continu entre f et g, sont égaux aux amplitudes du courant alternatif entre a et b.

Le pôle négatif g. est connecté au fil de platine

plongeant dans l'électrolyte du condensateur d'essai, tandis que du pôle positif f , partent deux dérivation vers les deux armatures d'aluminium du condensateur 1, en passant, comme dans le schéma précédent, par deux petits redresseurs G_1 et G_2 . L'expérience réussit aussi bien que dans le cas précédent, où le courant continu provenait d'une source indépendante.

Les électrodes d'aluminium furent à dessein fatiguées par un service exclusif en courant alternatif, sans circuit régénérateur, afin de ramener ensuite, par la fermeture de ce dernier, le rendement à sa valeur initiale, correspondant au degré de formation préalable des plaques.

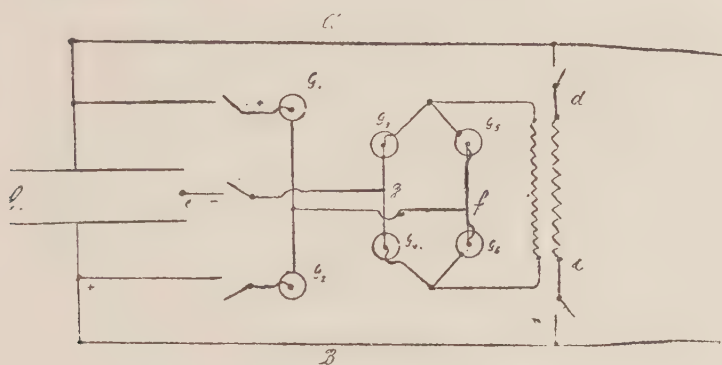


FIG. 6.

Ayant ainsi écarté un sérieux obstacle à l'emploi industriel des éléments électrolytiques à électrodes d'aluminium, comme condensateurs à basse tension, notamment la variabilité de leur rendement, je pus étudier de plus près le fonctionnement, sous courant alternatif, du condensateur d'essai avec circuit régénérateur.

Le schéma des appareils de mesure est le même que celui de la fig. 6. Au moment des lectures, le groupe redresseur est mis hors-circuit, afin d'éliminer des observations ses pertes propres.

Les résultats sont consignés dans les tables 3. et 4. ci-après :

La table n° 3 se rapporte à l'élément formé sous une tension maximum de 213 volts. La table n° 4 correspond à la formation sous 274 volts.

La dernière colonne des deux tables donne les pertes : $100 \cdot (\cos \varphi)$, en pour cent de la consommation apparente en volt ampères.

La comparaison des deux tables montre que les pertes décroissent quand le degré de formation est poussé plus loin. D'autre part, les pertes augmentent avec la tension de fonctionnement.

On peut considérer comme le résultat le plus important de ces expériences le fait que les pertes de ces condensateurs restent dans des limites assez faibles pour ne pas compromettre leur introduction dans la pratique. On peut supposer que par une formation poussée plus loin encore, les pertes seraient encore diminuées.

On peut aussi déduire des tables 3 et 4 les indications nécessaires sur la grandeur et la constance de la capacité de ce condensateur.

Table III

Plaques formées sous 213 volts

Tension du courant alternatif en volts	Intensité en amp.	Puissance apparente en volts amp.	Pertes en watts	Pertes en pour cent rapportées à l'énergie consommée
V.	J.	J. V.	J. V. $\cos \varphi$	$100 \cos \varphi$
95,1	0,461	43,89	3,00	7,0
87,5	0,415	36,31	2,53	6,7
77,0	0,357	27,49	1,70	6,1
68,9	0,321	22,12	1,27	5,8
61,7	0,283	17,46	0,95	5,4
50,5	0,237	11,97		
45,7	0,216	9,87		
40,0	0,187	7,48		
30,2	0,148	4,46		

Table IV

Plaques formées sous 274 volts

Tension du courant alternatif en volts	Intensité en amp.	Puissance apparente en volts amp.	Pertes en watts	Pertes en pour cent rapportées à l'énergie consommée
V.	J.	J. V.	J. V. $\cos \varphi$	100 $\cos \varphi$
98,5	0,417	41,07	2,52	6,1
88,9	0,384	34,14	2,05	6,0
78,9	0,332	26,19	1,55	5,9
72,3	0,305	22,05	1,28	5,8
60,4	0,250	15,10	0,85	5,6
50,6	0,219	11,08	0,60	5,4
42,4	0,180	7,63	0,40	5,2
30,2	0,140	4,23	0,21	4,96

Nous avons représenté graphiquement les résultats ci-dessus, en portant (fig. 11) les tensions en abscisses et les intensités en ordonnées. On obtient ainsi deux lignes droites, ce qui témoigne de la constance de la capacité, indépendamment de la tension de fonctionnement, pour un degré de formation déterminé. La comparaison des deux courbes entre elles montre d'ailleurs que l'on diminue la capacité en poussant plus loin le degré de formation, ce qui doit s'attribuer à l'épaississement correspondant de la pellicule d'oxyde d'aluminium.

Le calcul donne pour la valeur de la capacité dans le cas de la table III, env. 15 microfarads, dans le cas de la table IV, env. 14 microfarads, pour le condensateur essayé.

Afin d'augmenter les données expérimentales pouvant être utilisées pour la fabrication industrielle des condensateurs électrolytiques, je construisis un condensateur électrolytique à électrodes d'aluminium, d'une capacité d'environ 300 microfarads.

Les électrodes étaient formées de baguettes cylindriques d'aluminium, de 5^{mm} d'épaisseur et environ 320^{mm} de longueur, courbées à angle droit aux deux

extrémités, au nombre de 28, réunies par des rivures en deux faisceaux de $20 \times 5 \times 28^{\text{mm}}$, formant ainsi des plaques grillagées, dont les barreaux étaient à 3^{mm} de distance les uns des autres. L'aspect en est représenté en croquis sur la fig. 7.

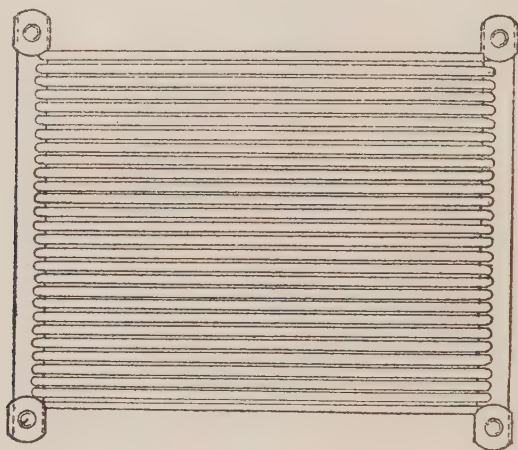


FIG. 7.

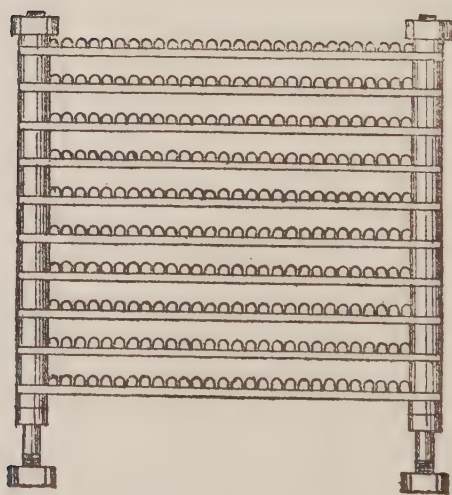


FIG. 8.

Dix de ces plaques étaient réunies par quatre vis d'aluminium introduites dans les trous 0, avec interposition d'anneaux de même métal P, réglant la distance des plaques entre elles (fig. 8).

Un tel groupe de 10 plaques formait l'armature du condensateur, et les deux groupes constituant l'appareil sont enchevêtrés l'un dans l'autre de manière à ce que deux plaques voisines appartiennent toujours à deux armatures différentes.

La photographie fig. 12 représente l'ensemble du condensateur, dans son bac en verre. Comme électrolyte, j'ai fait usage, de même que dans le condensateur d'essai, d'une solution de bicarbonate d'ammonium, dont les résultats avaient été satisfaisants.

Les trois tableaux suivants I_a, II_a, III_a, donnent les résultats des mesures effectuées pendant la formation, sous trois tensions de formation différentes (200 volts, 230 volts et 260 volts).

Table I a

Condensateur formé sous 200 volts

Tension du courant continu en volts V.	Intensité en amp. J.	Résistance totale en ohms R.	Résistance par 1 cm ² en 10 ⁸ ohms R. S.
149,0	0,291	512	0,188
140,7	0,210	670	0,247
132,0	0,160	825	0,304
121,2	0,117	1035	0,380
110,2	0,082	1341	0,493
100,3	0,060	1671	0,615
90,9	0,041	2217	0,816
79,3	0,028	2833	1,043
70,5	0,017	4147	1,526
60,5	0,011	5500	2,024
50,2	0,006	8366	3,079
39,6	0,0034	11647	4,286
29,8	0,0018	16553	6,092

Table II a

Condensateur formé sous 230 volts

Tension du courant continu en volts	Intensité en amp.	Résistance totale en ohms	Résistance par 1 cm ² en 10 ⁸ ohms
V.	J.	R.	R. S.
165,0	0,2700	611	0,22
158,0	0,2000	780	0,28
143,0	0,1030	1388	0,50
127,5	0,0590	2161	0,79
121,4	0,0460	2639	0,97
110,0	8,0350	3143	1,15
99,8	0,0250	3992	1,46
80,5	0,0150	5366	1,97
70,6	0,0110	6419	2,36
60,2	0,0080	7528	2,77
50,0	0,0056	8928	3,28
39,2	0,0033	11878	4,57
30,0	0,0018	16606	6,13

Table III a

Condensateur formé sous 260 volts

Tension du courant continu en volts	Intensité en amp.	Résistance totale en ohms	Résistance par 1 cm ² en 10 ⁸ ohms
V.	J.	R.	R. S.
149,9	0,0690	2172	0,79
144,3	0,0558	2586	0,95
134,0	0,0395	3392	1,24
124,3	0,0297	4185	1,54
120,5	0,0257	4687	1,72
110,5	0,0187	5887	2,17
99,3	0,0131	7580	2,79
89,8	0,0099	9070	3,34
79,8	0,0070	11400	4,19
70,8	0,0050	14160	5,21
59,8	0,0034	17588	6,47
51,0	0,0024	21250	7,82
30,2	0,0010	30200	11,11

Les mêmes mesures qu'avec l'élément d'essai furent faites avec ce condensateur. Des tables de mesures dressées d'une façon analogue montrent la dépendance

entre l'intensité du courant, la résistance et la tension appliquée aux armatures. Pour plus de clarté, ces résultats ont été traduits par des graphiques.

Les trois courbes de la fig. 13 correspondent aux trois états de formation expérimentés ; l'intensité du courant y est portée en fonction de la tension. On voit diminuer l'intensité, pour une même tension aux bornes, à mesure que le degré de formation est plus avancé. Les mêmes remarques sont à faire à propos du graphique fig. 14, où l'on a porté les résistances en fonction de la tension aux bornes, pour les trois degrés de formation.

De la considération de ces courbes, pour les trois états de formation des armatures, on tire la conclusion importante pour la pratique, de l'augmentation de la résistance à mesure que l'on pousse plus loin la formation préalable.

On ne constate donc pas de différence dans le processus de formation, entre ce condensateur et celui sur lequel nous avons expérimenté au début avec des plaques en guise d'électrodes, ce qui témoigne de la régularité de toute l'opération.

Comme précédemment, nous donnons, dans les tables Ib, IIb et IIIb, les résultats de fonctionnement de ce condensateur, en courant alternatif. On constate que les pertes en $\%$ procentuelle sont beaucoup plus élevées que pour le condensateur à plateaux des premiers essais.

Il faut rechercher dans la construction même de l'appareil cette différence de fonctionnement. La formation de bulles gazeuses en des endroits de l'électrode d'où elles ne peuvent pas s'éloigner facilement est tout particulièrement défavorable. Cette adhérence des bulles de gaz aux surfaces métalliques se produit surtout à la face inférieure des bandes d'aluminium, et empêche la formation d'être complète en ces points. Les électrodes ainsi insuffisamment formées donnent lieu à des pertes plus élevées.

Table I b

Condensateur formé à 200 volts

Tension du courant alternatif en volts V.	Intensité en amp. J.	Puissance apparente en volts amp. J. V.	Pertes en watts J. V. $\cos \varphi$	Pertes en pour cent de l'énergie consommée 100 $\cos \varphi$
20,10	2,33	46,83	4,0	8,5
28,7	3,52	101,02	8,5	8,5
39,0	4,80	187,20	17,2	9,1
48,5	6,08	294,88	28,1	9,5
58,2	7,39	430,10	43,3	10,0
67,9	8,82	598,88	67,5	11,4
87,0	11,67	1015,0	150,0	14,2
97,1	13,10	1272,0	206,2	16,1
107,0	14,70	1572,9	274,2	17,5
116,8	16,20	1892,2	361,9	19,7

Table II b

Condensateur formé à 230 volts

Tension du courant alternatif en volts V.	Intensité en amp. J.	Puissance apparente en volts amp. J. V.	Pertes en watts J. V. $\cos \varphi$	Pertes en pour cent de l'énergie consommée 100 $\cos \varphi$
19,8	2,10	41,58	3,0	7,0
28,3	2,97	84,05	6,5	7,0
40,6	4,23	171,72	13,0	7,5
49,7	5,17	256,94	21,0	8,1
66,9	7,14	479,67	45,0	9,4
78,0	8,53	665,34	70,0	10,5
88,1	9,66	831,72	98,0	11,9
98,1	11,07	1085,96	145,0	13,3
107,0	12,52	1339,64	196,0	14,8
113,8	13,10	1556,78	262,0	16,7

Table III b

Condensateur formé à 260 volts

Tension du courant alternatif en volts V.	Intensité en amp. J.	Puissance apparente en volt. amp. J. V.	Pertes en watts J. V. $\cos \varphi$	Pertes en pour cent de l'énergie consommée 100 $\cos \varphi$
19,8	1,9	37,62	3,0	7,0
28,0	2,68	75,04	5,5	7,0
39,6	3,66	114,93	12,0	8,2
48,1	4,63	222,70	20,0	8,9
68,9	6,86	472,65	50,0	10,6
76,7	7,46	572,18	62,5	10,9
99,6	9,76	972,09	133,9	13,7
107,9	11,36	1225,70	197,4	16,1
116,9	12,71	1485,80	260,6	17,5

Comme nous l'avons fait, pour le condensateur à plateaux, nous traduirons graphiquement le rapport de l'intensité du courant à la tension alternative appliquée au condensateur (fig. 15). Les conclusions précédentes sont parfaitement confirmées : la capacité du condensateur reste, pour un degré de formation donné, indépendante de la tension aux bornes. La capacité diminue, d'ailleurs, avec l'élévation de l'état de formation.

On peut résumer comme suit les résultats de la présente étude :

1. Le processus de formation sous un courant continu de tension donnée, aboutit à un état stationnaire des électrodes. Cet état atteint, la prolongation du temps d'application du courant de formation, sous la même tension, ne produit plus aucune amélioration de la résistance ohmique de la pellicule d'oxyde d'aluminium.
2. Afin que la résistance sous la tension ci-dessus puisse atteindre des valeurs plus élevées, il faut

former la plaque en élevant graduellement la tension au dessus de cette valeur, et, si l'on revient alors à la tension de formation initiale, la résistance pour cette tension s'est améliorée.

3. Par le procédé ci-dessus, on peut former sans difficulté des plaques présentant une résistance spécifique allant jusqu'à 10^8 ohms par 1 cm^2 .
4. Pour un degré de formation déterminé, la résistance de la pellicule d'oxyde d'aluminium n'est pas constante: elle diminue avec l'augmentation de la tension, et, dans les limites de tension fournissant encore de bons états de formation, cette diminution est à peu près proportionnelle à la tension.
5. En élevant la tension de formation, on déplace parallèlement la limite de rupture diélectrique de la pellicule.
6. Pour un degré de formation donné, la capacité est constante et indépendante de la tension.
7. La capacité est diminuée par l'augmentation du degré de formation; pour des degrés de formation moyennement élevés, la capacité tombe déjà à $0,017$ microfarads par 1 cm^2 .
8. En même temps que l'augmentation de résistance et la diminution de capacité par l'élévation du degré de formation, on constate l'amélioration de l'effet utile des condensateurs électrolytiques à électrodes d'aluminium. Le rendement de ces appareils fonctionnant sous 100 volts de tension alternative peut facilement atteindre 95 %.
9. Employés simplement comme condensateurs, les éléments électrolytiques à électrodes d'aluminium ne pourraient être introduits dans la pratique, à cause de la rapide augmentation des pertes lors du fonctionnement prolongé, quel que soit le mode de formation préalable.

10. Afin d'obtenir un rendement constant, condition essentielle pour l'emploi industriel de ces appareils, il faut combiner la formation sous courant continu avec le fonctionnement sous courant alternatif, par l'addition, au schéma de connexions ordinaire, d'un circuit de régénération spécial.

La conclusion de la présente étude est la possibilité d'employer, comme condensateurs, des éléments électrolytiques à électrodes d'aluminium, et j'ose espérer que ses résultats pourraient servir de base à de nouveaux essais, entrepris au point de vue plus spécial de la technique.

Ce travail a été fait à l'Institut de physique de l'université de Fribourg (Suisse).

Qu'il me soit permis, en terminant, d'exprimer toute ma gratitude au directeur de cet institut, M. le professeur Dr J. von Kowalski, pour la mise à ma disposition de tout le matériel d'expériences, et à M. J. Moscicki, pour ses précieux conseils et pour l'intérêt avec lequel il a suivi mes travaux.



CURICULUM VITAE

Je suis né à Chmielówka (Podolie) le 24 février 1875. En 1887 j'entrais au Collège St-Paul à Odessa et j'en sortais en 1893 avec mon certificat de maturité.

En 1894 je subissais l'examen d'admission à l'Université de Liège. (Pour des raisons de famille j'ai interrompu mes études pendant 2 ans.) En 1898 je passais « avec distinction », à l'Université de Liège, l'examen constituant la première épreuve de la candidature en sciences physico-chimiques.

En 1899 lors de la seconde épreuve ; la Faculté des sciences de l'Université de l'Etat à Liège me conférait le grade scientifique de candidat en Sciences physico-chimiques.

En 1900, j'arrivais à l'Université de Fribourg, où, sous la direction de M. le Professeur de Kowalski, j'ai travaillé au laboratoire de physique. — Nous publiâmes dans « les comptes-rendus des Séances de l'Académie des Sciences » un travail sur « Les indices de réfraction des mélanges des liquides ».

En 1901 je fus nommé assistant au laboratoire de Physique de l'Université de Fribourg.

En 1903 je créais la Fabrique de Condensateurs Electriques, que je cédaï en 1905 à Société Générale des Condensateurs, dont j'étais, et suis encore, un des directeurs.

Entre 1903 et 1906 mon temps libre fut consacré à l'élaboration de ma thèse.

Des raisons de santé m'interrompirent pendant un an et c'est pourquoi en avril 1908 seulement je pus subir mon épreuve orale de Docteur en phil. nat. et j'obtins la note Magna cum Laude.

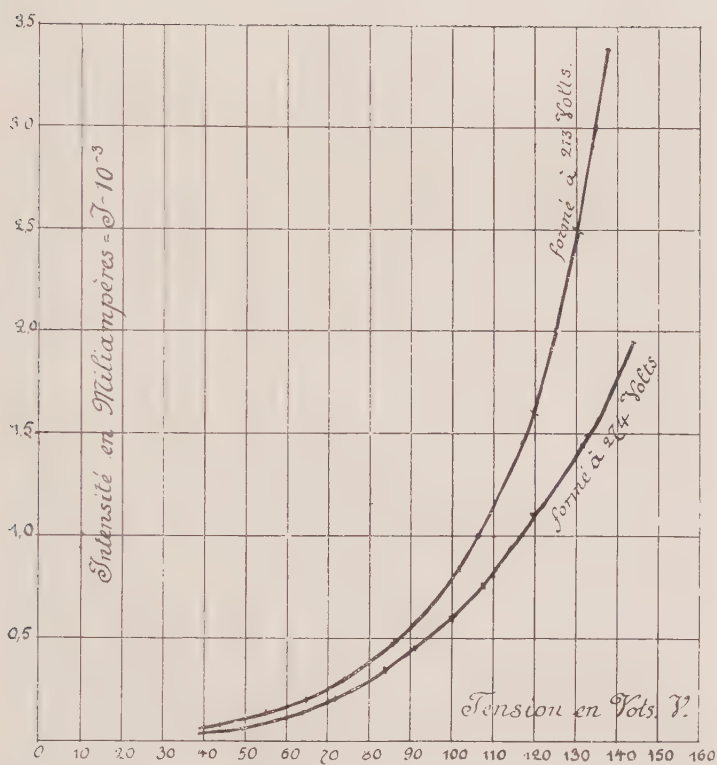


FIG. 9.

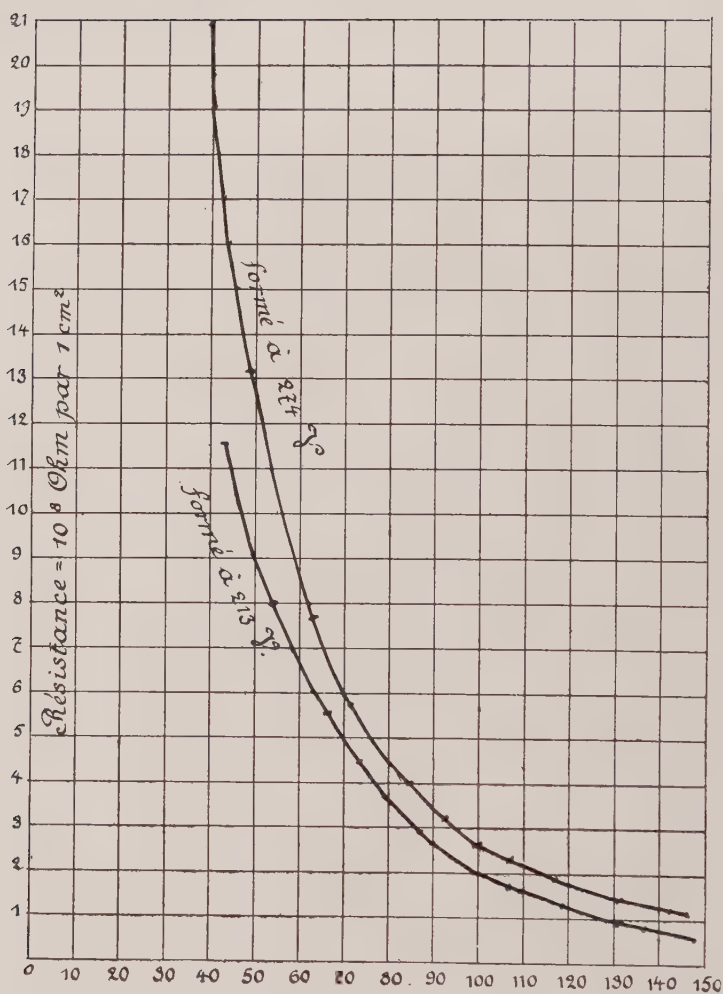


FIG. 10.

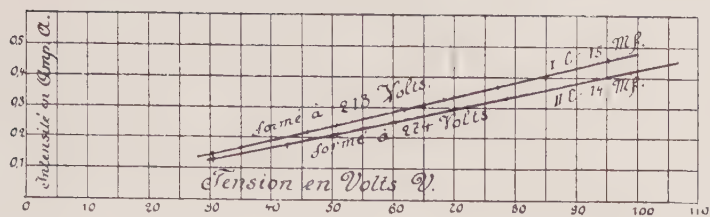


FIG. 11.

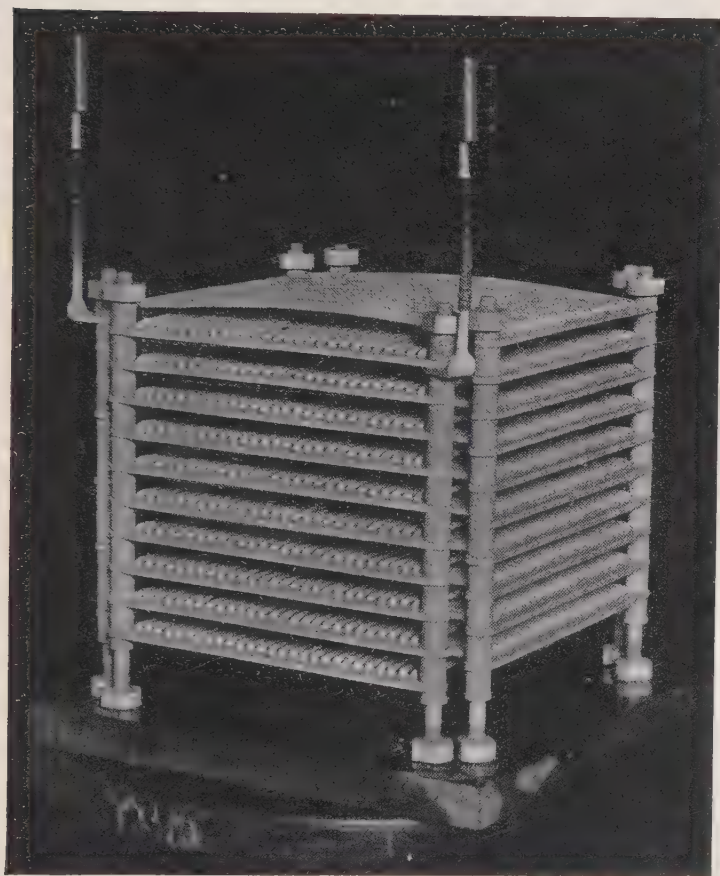


FIG. 12.

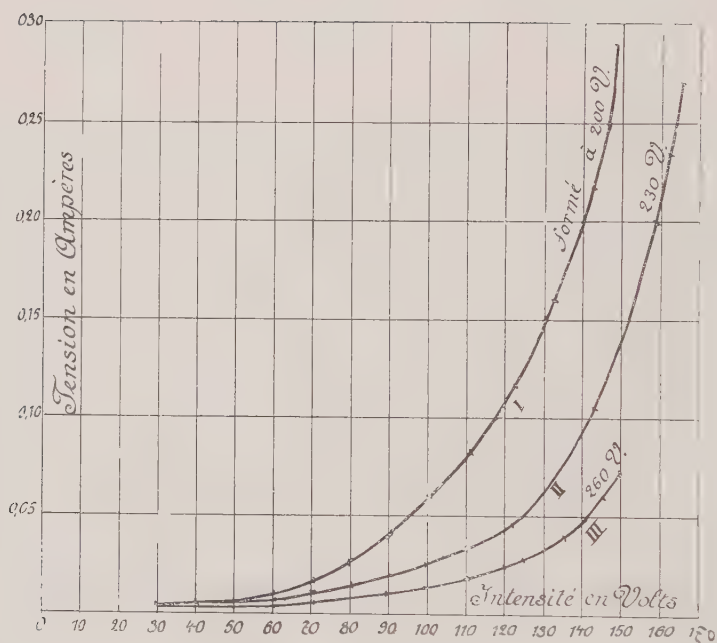


FIG. 13.

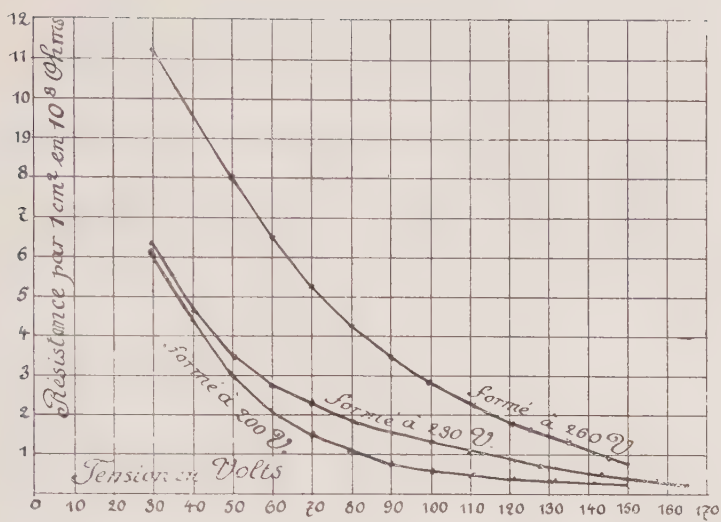


FIG. 14.

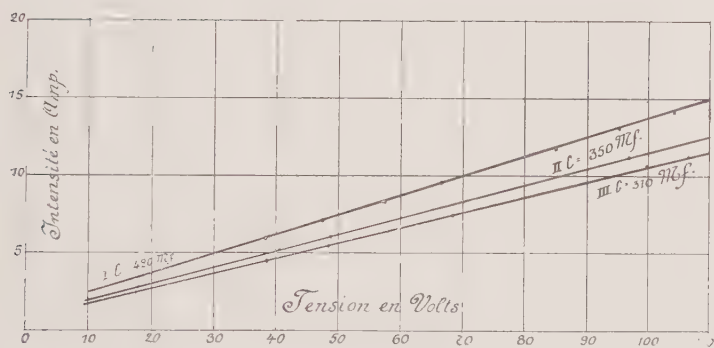


FIG. 15.



